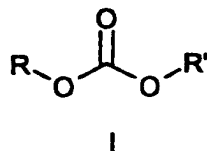


JC05 Rec'd PCT/PTO 06 JUL 2001

Verfahren zur Herstellung von symmetrischen und
unsymmetrischen Carbonaten

Beschreibung

- 5 Die vorliegende Erfindung betrifft die Herstellung von
symmetrischen und unsymmetrischen Carbonaten der
allgemeinen Formel I



- 10 worin R und R' gleich oder verschieden sind und eine
geradkettige oder verzweigte Alkylgruppe mit 1 bis 10 C-
Atomen, eine unsubstituierte oder mit bis zu drei C₁-C₄-
Alkylgruppen, C₁-C₄-Alkoxygruppen, Halogenatomen, mit einer
Cyanogruppe, einer Nitrogruppe, einer Trifluormethylgruppe
oder einer Alkoxycarbonylgruppe mit bis zu 4 C-Atomen
15 substituierte Benzylgruppe, eine Aralkylgruppe oder eine
Alkenylgruppe bedeuten. Der Begriff Aralkylgruppe umfaßt
einen niederen Alkylrest mit 2 bis 10 C-Atomen, worin bis
zu zwei H Atome durch Phenylgruppen ersetzt sind, die
gegebenenfalls wiederum mit einer C₁-C₄-Alkylgruppe, einer
20 C₁-C₄-Alkoxygruppe, einer Cyanogruppe, einer Nitrogruppe,

einer Trifluoromethylgruppe, einer Alkoxycarbonylgruppe mit bis zu 4 C-Atomen oder mit bis zu drei Halogenatomen substituiert sein können. Der Begriff Alkenyl bezeichnet einen ungesättigten Kohlenwasserstoffrest mit bis zu 5 C-Atomen.

Organische Carbonate spielen eine wichtige Rolle als Lösungsmittel, als Zwischenprodukte für zahlreiche Synthesen und als Produkte für spezielle Anwendungsgebiete, z.B. in der Agrikulturchemie oder der Medizinischen Chemie (Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, 5th Ed., Vol. A5, S. 197, 1986; KIRK-OTHMER, Encyclopedia of Chemical Technology, 3th Ed., Vol. 4, S. 766, 1978; Abbas-Alli G. Shaikh, Chem. Rev. 1996, 96, 951-976).

Die Herstellung offenkettiger organischer Carbonate kann z.B. erfolgen (i) aus Phosgen und Hydroxyverbindungen, (ii) aus Halogenameisensäuren durch Umsetzung mit Hydroxyverbindungen, (iii) durch Alkylierung von Alkalimetallcarbonaten (iv) durch Umesterung von Kohlensäurediestern oder (v) aus Kohlendioxid und Alkoholen unter Druck in Gegenwart von Katalysatoren oder aber nach anderen speziellen Verfahren (H. Hagemann, HOUBEN WEYL, E4, S. 65, 1983; Abbas Alli G. Shaikh, Chem. Rev. 1966, 96, 951).

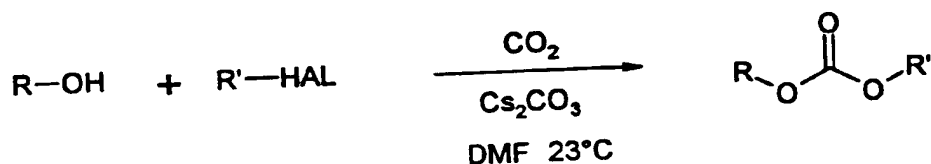
Verfahren zur Herstellung von organischen Carbonaten, die die Verwendung des hochgiftigen Phosgens vermeiden, das vorhandene Kohlendioxid nutzen können und von einfachen Rohstoffen ausgehen, sind aus industrieller sowie organisch-präparativer Sicht von besonderem Interesse. Angeregt durch eine Arbeit von Ken J. Butcher zur Herstellung von Carbamaten aus Aminen und Kohlendioxid (Ken

J. Butcher, Synlett 1994, 825) wurde von uns untersucht, ob sich Alkohole der allgemeinen Formel II unter Verwendung von Kohlendioxid, Cesiumcarbonat und Alkyl- bzw. Arylhaliden der allgemeinen Formel III,



5

wobei R und R' die oben genannte Bedeutung besitzen und HAL für Chlor, Brom oder Iod steht, in organische Carbonate der allgemeinen Formel I überführen lassen (Schema 1):



- 10 Aufgrund der geringeren Nucleophilie der OH-Gruppe in Alkoholen im Vergleich zur NH₂-Gruppe in Aminen und aufgrund der in der Literatur beschriebenen speziellen Methoden zur Herstellung von Carbonaten aus Kohlendioxid (Abbas-Alli G. Shaikh, Chem. Rev. 1996, 96, 951, 966,) war
- 15 ein synthetischer Zugang zu Carbonaten unter Verwendung des Systems Kohlendioxid/Cesiumcarbonat bei niedrigen Temperaturen nicht zu erwarten.

Überraschenderweise wurde jedoch gefunden, daß sich organische Carbonate der allgemeinen Formel I unter sehr

milden und präparativ einfachen Bedingungen in Gegenwart von Alkalicarbonaten, insbesondere Cesiumcarbonat, aus Alkoholen der allgemeinen Formel II und Alkyl- bzw. Arylhalogeniden der allgemeinen Formel III herstellen lassen. Für diese Reaktion ist überraschenderweise kein weiterer Katalysator erforderlich. Die präparative Vorgehensweise ist wie folgt:

Der Alkohol und ein 2 bis dreifacher molarer Überschuss an Cesiumcarbonat werden in einem geeigneten dipolar aprotischen Lösungsmittel wie z.B. Dimethylformamid, Acetonitril, Dimethylacetamid oder N-Methylpyrrolidon bei Raumtemperatur vorgelegt. Unter gutem Rühren wird nun bei Raumtemperatur unter Feuchtigkeitsausschluß 4 bis 6 Stunden Kohlendioxidgas in die Reaktionsmischung eingeleitet (ca. 5 Blasen/Sekunde). Das Kohlendioxid wird hierbei durch Verdampfenlassen von Trockeneis erzeugt, das sich in einem Erlenmeyerkolben befindet, der mit dem Reaktionsgefäß über ein Gaseinleitungsrohr verbunden ist. Nun fügt man in einer Portion 1 Equivalent (bezogen auf den Alkohol) des betreffenden Alkyl- bzw. Aryl-halogenids der allgemeinen Formel III, gelöst in wenig Lösemittel, zur Reaktionsmischung, leitet 1 Stunde weiter Kohlendioxid ein, fügt nochmals 5-100%, vorzugsweise 10%, der ursprünglichen Alkyl- bzw. Arylhalogenidmenge hinzu und verschließt dann das Reaktionsgefäß. Bei geschlossenem Reaktionsgefäß rührt man nun 24 Stunden bis 3 Tage bei Raumtemperatur weiter. Danach gießt man die Reaktionsmischung auf Wasser, extrahiert das Produkt mit Essigester und reinigt das so erhaltene Rohprodukt mit den in der präparativen organischen Chemie üblichen Methoden, z.B. durch

Chromatographie oder Kristallisation. Bevorzugtes Lösungsmittel für die beschriebene Reaktion ist Dimethylformamid.

Die Reaktionsbedingungen sind sehr milde, es werden viele funktionelle Gruppen, wie z.B. die Doppelbindung, die Nitrogruppe, die Alkoxy-carbonylgruppe, die Cyanogruppe, Halogengruppen und Alkoxygruppen an Aromaten toleriert. Die Ausgangsmaterialien, - Alkohole und Alkyl- und Arylhalogenide - sind einfach herstellbar und stehen in großer Zahl käuflich zur Verfügung. Sehr einfach gestalten sich die Bedingungen zum Aufarbeiten der Reaktion. Unter der Annahme, daß Cesiumcarbonat aus dem extrahierten, wässrigen Rückstand wiederhergestellt werden kann, ist die Methode geeignet, gasförmiges Kohlendioxid an einfache käufliche Ausgangsmaterialien wie Alkohole und Alkyl- bzw. Arylhalogenide zu binden und dadurch wertvolle, energiereiche Zwischenprodukte zu erzeugen. In diesem Sinne ist das genannte Verfahren ein wertvoller Beitrag zu einer umweltfreundlichen Chemie.

Wegen der Einfachheit des Verfahrens ist die Vorgehensweise auch hervorragend als Basis für eine 'High Throughput Synthesis' geeignet. Hierzu müßten in einer Kohlendioxid-Begasungs-Apparatur, die DMF-Lösungen entsprechender Alkohole enthalten, gleichzeitig mit CO₂ für einige Stunden begast werden. Danach sind die entsprechenden Alkyl- bzw. Arylhalogenide zuzudosieren, die Gefäße zu verschließen und für 24 Stunden bis 3 Tage bei Raumtemperatur zu rühren. Danach sind die gebildeten Carbonate in einfacher Weise zu isolieren.

Die Erfindung wird durch die nachfolgenden Ausführungsbeispiele veranschaulicht und erläutert.

Beispiel 1

Dibenzylcarbonat

5 aus Benzylalkohol und Benzylbromid

In eine Suspension von 0.45 g Benzylalkohol, und 3.0 g Cesiumcarbonat in 30 mL trockenem Dimethylformamid, die sich in einem 50 mL Dreihalskolben befindet, wird 4 Std. unter gutem Rühren bei Raumtemperatur Kohlendioxidgas
10 eingeleitet. Man fügt 0.7 g Benzylbromid, gelöst in wenig DMF, hinzu, leitet 1 Std. weiter Kohlendioxid ein, versetzt nochmals mit 0.1 g Benzylchlorid und verschließt dann luftdicht das Reaktionsgefäß. Die Reaktionsmischung wird nun 2 Tage bei Raumtemperatur weitergerührt. Danach gießt
15 man die Reaktionsmischung auf 50 mL Wasser (Vorsicht: exotherme Reaktion) und extrahiert das Produkt 3 mal mit jeweils 50 mL Essigester. Die organische Phase wird über Natriumsulfat getrocknet, filtriert und am Rotavapor eingeengt. Das im öligen Rückstand zusammen mit dem Produkt
20 befindliche Dimethylformamid wird am Rotavapor durch azeotrope Destillation mittels Toluol bei 40 mbar/50°C entfernt. Der Rückstand wird an 130 g Silica Gel (0.040 - 0.063 mm) mit Toluol als Elutionsmittel chromatographiert. Man erhält
25 0.95 g Produkt, Fp. 30 - 31°C.

Die folgenden Beispiele wurden in Analogie zu Beispiel 1 durchgeführt (Reaktionszeit in Stunden/Ausbeute):

Beispiel 2

Benzyl-2-phenylethylcarbonat, Öl
aus 2-Phenylethanol und Benzylbromid
48/93%

5 Beispiel 3

Benzyl-ethylcarbonat, Öl,
aus Benzylalkohol und Ethylbromid
18/73%

Beispiel 4

10 Benzyl-tert. Butylcarbonat, Öl,
aus tert. Butanol und Benzylbromid
120/15%

Beispiel 5

15 Di-Benzo[b]furan-2-yl-methylcarbonat, Öl
aus 2-Hydroxymethylbenzo[b]furan und 2-
Chlormethylbenzo[b]furan
120/23%

Beispiel 6

20 Benzyl-3-phenylpropylcarbonat, Öl
aus 3-Phenylpropanol und Benzylbromid
120/99%

Beispiel 7

Benzyl-4-Chlorbenzylcarbonat, Öl

aus Benzylalkohol und 4-Chlorbenzylchlorid
64/50%

Beispiel 8

Benzyl-4-Methoxybenzylcarbonat, Öl
5 aus Benzylalkohol und 4-Methoxybenzylchlorid
88/64.4%

Beispiel 9

Benzyl-4-Methylbenzylcarbonat, Öl
aus Benzylalkohol und 4-Methylbenzylchlorid
10 64/52.3%

Beispiel 10

Benzyl-2,4-Dichlorbenzylcarbonat, Öl
aus Benzylalkohol und 2,4-Dichlorbenzylchlorid
64/49%

15 Beispiel 11

4-Chlorbenzyl-2-phenylethylcarbonat, Öl
aus 2-Phenylethanol und 4-Chlorbenzylchlorid
64/32.7%

Beispiel 12

20 Di-4-Methoxybenzylcarbonat, Fp 73°C
aus 4-Methoxybenzylalkohol und 4-Methoxybenzylchlorid
88/72%

Beispiel 13

Di-2,4-Dichlorbenzylcarbonat, Öl

aus 2,4-Dichlorbenzylalkohol und 2,4-Dichlorbenzylchlorid
64/70.5%

5 **Beispiel 14**

Di-4-Methylbenzylcarbonate, Fp 55°C

aus 4-Methylbenzylalkohol und 4-Methylbenzylbromid
88/40%

Beispiel 1510

Di-4-Chlorbenzylcarbonat, Fp 94°C

aus 4-Chlorbenzylalkohol und 4-Chlorbenzylbromid
64/78.3%

Beispiel 16

Di-4-Chlorbenzylcarbonat, Fp 97°C

15

aus 4-Chlorbenzylalkohol und 4-Chlorbenzylchlorid
64/54.8%

Beispiel 17

(±)-Benzyl-2-Methyl-2-phenylethylcarbonat, Öl

aus (±)-2-Methyl-2-phenylethylalkohol und Benzylbromid

20

64/63.1%

Beispiel 18

Benzhydryl-Benzylcarbonat, Fp 72°C
aus Benzhydrol und Benzylbromid
64/71.2%

5 Beispiel 19

(±)-Benzyl-1-Phenylethylcarbonat, Öl
aus (±)-1-Phenylethanol und Benzylbromid
64/57.1%

Beispiel 20

10 Benzyl-3-Phenylpropylcarbonat, Öl
aus 3-Phenylpropanol und Benzylbromid
120/99%

Beispiel 21

(±)-Benzyl-1-Methyl-2-phenylethylcarbonat, Öl
15 aus (±)-1-Phenyl-2-propanol und Benzylbromid
120/99%

Beispiel 22

Benzyl-4-Methoxycarbonylbenzylcarbonat, Fp 53°
aus 4-Methoxycarbonylbenzylalkohol und Benzylbromid
20 120/65%

Beispiel 23

Di-4-Nitrobenzylcarbonat, Fp 167° - 168°C

aus 4-Nitrobenzylalkohol und 4-Nitrobenzylbromid
64/77%

Beispiel 24

Benzy1-benzo[b]furan-2-ylmethylcarbonat, Fp 59° - 60°C
5 aus 2-Hydroxymethylbenzo[b]furan und Benzylbromid
64/100%

Beispiel 25

Benzy1-4-Cyanobenzylcarbonat, Fp 54°
aus Benzylalkohol und 4-Cyanbenzylbromid
10 64/100%

Beispiel 26

Benzy1-3-Trifluormethylbenzylcarbonat, Öl
aus Benzylalkohol und 3-Trifluormethylbenzylbromid
48/100%

15 Beispiel 27

Benzy1-1-Phenylethylcarbonat, Öl
aus Benzylalkohol und 1-Phenylethylbromid
64/66%

Beispiel 28

20 Di-2-Phenylethylcarbonat, Fp 56°C
aus 2-Phenylethanol und 2-Phenylethylbromid
64/69.4%

Beispiel 29

Di-3-Phenylpropylcarbonat, Öl
aus 3-Phenylpropanol und 3-Phenylpropylbromid
64/98%

5 Beispiel 30

Benzyl-tert. Butylcarbonat, Öl
aus Benzylalkohol und tert. Butylbromid
64/7%

Beispiel 31

10 Benzyl-4-Nitrobenzylcarbonat, Fp 68°C
aus Benzylalkohol und 4-Nitrobenzylbromid
64/93%

Beispiel 32

15 Allyl-Benzylcarbonat, Öl,
aus Benzylalkohol und Allylbromid
64/80%

Beispiel 33

20 Allyl-Benzylcarbonat, Öl
aus Allylalkohol und Benzylbromid
64/70%

Beispiel 34

Benzyl-Cinnamylcarbonat, Öl
aus Zimtalkohol und Benzylbromid
64/74.5%

5 Beispiel 35

(±)-Benzyl-1-Methylpropylcarbonat, Öl
aus (±)-1-Methylpropanol und Benzylbromid
64/58%

Beispiel 36

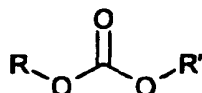
10 Benzyl-Butylcarbonat, Öl
aus n-Butanol und Benzylbromid
48/58.5%

Beispiel 37

15 Benzyl-4-Nitrobenzylcarbonat, Fp 68°C
aus 4-Nitrobenzylalkohol und Benzylbromid
64/80.6%

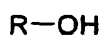
Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von symmetrischen und unsymmetrischen Carbonaten der allgemeinen Formel I

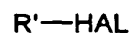


I

- 5 in welcher
R und R' gleich oder verschieden sind und eine geradkettige oder verzweigte Alkylgruppe mit 1 bis 10 C-Atomen, eine unsubstituierte oder mit bis zu drei C₁-C₄-Alkylgruppen, C₁-C₄-Alkoxygruppen, Halogenatomen,
10 mit einer Cyanogruppe, einer Nitrogruppe, einer Trifluormethylgruppe oder einer Alkoxycarbonylgruppe mit bis zu 4 C-Atomen substituierte Benzylgruppe, eine Aalkylgruppe oder eine Alkenylgruppe bedeuten, dadurch gekennzeichnet, daß man Alkohole der
15 allgemeinen Formel II und Alkyl- bzw. Arylhalide der allgemeinen Formel III,



II



III

in welchen R und R' die oben genannte Bedeutung besitzen und HAL für Chlor, Brom oder Iod steht,

mittels Kohlendioxid und Cesiumcarbonat in einem dipolar aprotischen Lösungsmittel in organische Carbonate der allgemeinen Formel I überführt.

2. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet,
5 daß das Lösungsmittel Dimethylformamid, Acetonitril, Dimethylacetamid oder N-Methylpyrrolidon ist.
3. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet,
daß die Reaktion bei Raumtemperatur durchgeführt wird.
4. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet,
10 daß das Kohlendioxid gasförmig in den Reaktionsansatz eingeleitet wird.
5. Verfahren gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet,
daß der Alkohol (II) mit einem 2- bis 3-fachen
15 Überschuss an Cesiumcarbonat in einem dipolar aprotischen Lösungsmittel vorgelegt wird, für mehrere Stunden Kohlendioxidgas eingeleitet wird und anschließend das Halid (III) equimolar zugesetzt und die Einleitung von Kohlendioxidgas noch für einige Zeit fortgesetzt wird.
- 20 6. Symmetrische oder unsymmetrischen Carbonate der allgemeinen Formel I hergestellt nach dem Verfahren der Ansprüche 1 bis 5.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 00/00340

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 C07C68/04 C07C69/96

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 C07C

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	FANG, SHUNNONG ET AL: "Direct synthesis of dimethyl carbonate from carbon dioxide and methanol catalyzed by base" APPL. CATAL., A (1996), 142(1), L1-L3 , XP000882681 the whole document	1-6
A	BUTCHER ET AL: "Carbamate esters: a simple, mild method of formation" SYNLETT, XP000882931 cited in the application the whole document	1-5
-/--		

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☐ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

T later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

X document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

Y document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

A document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

4 April 2000

Date of mailing of the international search report

18/04/2000

Name and mailing address of the ISA
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Arias-Sanz, J

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Intern. Application No.

PCT/EP 00/00340

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>DATABASE WPI Section Ch, Week 199515 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A41, AN 1995-110592 XP002134803 & JP 07 033715 A (SHOWA DENKO KK), 3 February 1995 (1995-02-03)</p>	1-5
X	<p>abstract</p>	6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Intern. Application No

PCT/EP 00/00340

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 7033715 A	03-02-1995	NONE	

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C07C68/04 C07C69/96

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C07C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	FANG, SHUNNONG ET AL: "Direct synthesis of dimethyl carbonate from carbon dioxide and methanol catalyzed by base" APPL. CATAL., A (1996), 142(1), L1-L3 , XP000882681 das ganze Dokument	1-6
A	BUTCHER ET AL: "Carbamate esters: a simple, mild method of formation" SYNLETT, XP000882931 in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument	1-5

-/-



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderschaftlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderschaftlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

4. April 2000

Abschließdatum des internationalen Recherchenberichts

18/04/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Arias-Sanz, J

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	<p> DATABASE WPI Section Ch, Week 199515 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A41, AN 1995-110592 XP002134803 & JP 07 033715 A (SHOWA DENKO KK), 3. Februar 1995 (1995-02-03) </p>	1-5
X	<p> Zusammenfassung </p>	6

INTERNATIONALEK HERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internes

Zeichen

PCT/EP 00/00340

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
JP 7033715 A	03-02-1995	KEINE	



PCT
WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro
INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<p>(51) Internationale Patentklassifikation ⁷ : C07C 68/04, 69/96</p>	<p>A1</p>	<p>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/47544</p> <p>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 17. August 2000 (17.08.00)</p>		
<table style="width: 100%; border: none;"> <tr> <td style="width: 50%; border: none; vertical-align: top;"> <p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/00340</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 18. Januar 2000 (18.01.00)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 199 05 222.0 9. Februar 1999 (09.02.99) DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): GÖDECKE AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Salzuber 16, D-10587 Berlin (DE).</p> <p>(72) Erfinder; und</p> <p>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BARTH, Hubert [DE/DE]; Bertold-Brecht-Weg 6, D-79312 Emmendingen (DE). STEINER, Klaus [DE/DE]; Jörg-Erb-Weg 6, D-79312 Emmendingen (DE). SCHNEIDER, Simon [DE/DE]; Alte Strasse 28a, D-79249 Merzhausen (DE). BAYER, Ulrich [DE/DE]; Weickmannstrasse 25, D-89077 Ulm (DE). WESTERMAYER, Manfred [DE/DE]; Kandelstrasse 62, D-79194 Gundelfingen (DE). WOLFSPERGER, Ulrike [DE/DE]; Gewerbestrasse 84, D-79194 Gundelfingen (DE).</p> <p>(74) Anwälte: MANSMANN, Ivo usw.; Gödecke AG, Mooswal- dallee 1, D-79090 Freiburg (DE).</p> </td> <td style="width: 50%; border: none; vertical-align: top;"> <p>(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AU, BA, BB, BG, BR, CA, CN, CR, CU, CZ, DM, EE, GD, GE, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KP, KR, LC, LK, LR, LT, LV, MA, MG, MK, MN, MX, NO, NZ, PL, RO, SG, SI, SK, TR, TT, UA, US, UZ, VN, YU, ZA, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p>Veröffentlicht Mit internationalem Recherchenbericht.</p> </td> </tr> </table>			<p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/00340</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 18. Januar 2000 (18.01.00)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 199 05 222.0 9. Februar 1999 (09.02.99) DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): GÖDECKE AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Salzuber 16, D-10587 Berlin (DE).</p> <p>(72) Erfinder; und</p> <p>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BARTH, Hubert [DE/DE]; Bertold-Brecht-Weg 6, D-79312 Emmendingen (DE). STEINER, Klaus [DE/DE]; Jörg-Erb-Weg 6, D-79312 Emmendingen (DE). SCHNEIDER, Simon [DE/DE]; Alte Strasse 28a, D-79249 Merzhausen (DE). BAYER, Ulrich [DE/DE]; Weickmannstrasse 25, D-89077 Ulm (DE). WESTERMAYER, Manfred [DE/DE]; Kandelstrasse 62, D-79194 Gundelfingen (DE). WOLFSPERGER, Ulrike [DE/DE]; Gewerbestrasse 84, D-79194 Gundelfingen (DE).</p> <p>(74) Anwälte: MANSMANN, Ivo usw.; Gödecke AG, Mooswal- dallee 1, D-79090 Freiburg (DE).</p>	<p>(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AU, BA, BB, BG, BR, CA, CN, CR, CU, CZ, DM, EE, GD, GE, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KP, KR, LC, LK, LR, LT, LV, MA, MG, MK, MN, MX, NO, NZ, PL, RO, SG, SI, SK, TR, TT, UA, US, UZ, VN, YU, ZA, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p>Veröffentlicht Mit internationalem Recherchenbericht.</p>
<p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/00340</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 18. Januar 2000 (18.01.00)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 199 05 222.0 9. Februar 1999 (09.02.99) DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): GÖDECKE AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Salzuber 16, D-10587 Berlin (DE).</p> <p>(72) Erfinder; und</p> <p>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BARTH, Hubert [DE/DE]; Bertold-Brecht-Weg 6, D-79312 Emmendingen (DE). STEINER, Klaus [DE/DE]; Jörg-Erb-Weg 6, D-79312 Emmendingen (DE). SCHNEIDER, Simon [DE/DE]; Alte Strasse 28a, D-79249 Merzhausen (DE). BAYER, Ulrich [DE/DE]; Weickmannstrasse 25, D-89077 Ulm (DE). WESTERMAYER, Manfred [DE/DE]; Kandelstrasse 62, D-79194 Gundelfingen (DE). WOLFSPERGER, Ulrike [DE/DE]; Gewerbestrasse 84, D-79194 Gundelfingen (DE).</p> <p>(74) Anwälte: MANSMANN, Ivo usw.; Gödecke AG, Mooswal- dallee 1, D-79090 Freiburg (DE).</p>	<p>(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AU, BA, BB, BG, BR, CA, CN, CR, CU, CZ, DM, EE, GD, GE, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KP, KR, LC, LK, LR, LT, LV, MA, MG, MK, MN, MX, NO, NZ, PL, RO, SG, SI, SK, TR, TT, UA, US, UZ, VN, YU, ZA, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p>Veröffentlicht Mit internationalem Recherchenbericht.</p>			
<p>(54) Title: METHOD FOR PRODUCING SYMMETRICAL AND ASYMMETRICAL CARBONATES</p> <p>(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON SYMMETRISCHEN UND UNSYMMETRISCHEN CARBONATEN</p> <div style="text-align: center; margin: 20px 0;"> $\begin{array}{ccc} \text{R}-\text{O} & \text{O} & \text{O}-\text{R}' \\ & \parallel & \\ & \text{C} & \end{array} \quad \text{(I)}$ $\text{R}-\text{OH} \quad \text{(II)}$ $\text{R}'-\text{HAL} \quad \text{(III)}$ </div> <p>(57) Abstract</p> <p>The invention relates to a method for preparing symmetrical and asymmetrical carbonates of the general formula (I) by reacting alcohols of the general formula (II) and alkyl or aryl halides of the general formula (III) with carbon dioxide and cesium carbonate at ambient temperature in dipolar aprotic solvents.</p> <p>(57) Zusammenfassung</p> <p>Verfahren zur Herstellung von symmetrischen und unsymmetrischen Carbonaten der allgemeinen Formel (I) durch Umsetzung von Alkoholen der allgemeinen Formel (II) und Alkyl- bzw. Arylhaliden der allgemeinen Formel (III), mit Kohlendioxid und Cesiumcarbonat bei Raumtemperatur in dipolar aprotischen Lösungsmitteln.</p>				

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Letland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauritanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland		
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

P 1.1.07
Translation

09/869871

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference PD-6381	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP00/00340	International filing date (day/month/year) 18 January 2000 (18.01.00)	Priority date (day/month/year) 09 February 1999 (09.02.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07C 68/04		
Applicant GÖDECKE GMBH		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of <u>5</u> sheets, including this cover sheet. <input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT). These annexes consist of a total of _____ sheets.
3. This report contains indications relating to the following items: I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report II <input type="checkbox"/> Priority III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited VII <input checked="" type="checkbox"/> Certain defects in the international application VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 04 August 2000 (04.08.00)	Date of completion of this report 09 January 2001 (09.01.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP00/00340

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (*Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.*):

- ☐ the international application as originally filed.
- ☒ the description, pages 1-13, as originally filed,
 pages _____, filed with the demand,
 pages _____, filed with the letter of _____,
 pages _____, filed with the letter of _____.
- ☒ the claims, Nos. 1-6, as originally filed,
 Nos. _____, as amended under Article 19,
 Nos. _____, filed with the demand,
 Nos. _____, filed with the letter of _____,
 Nos. _____, filed with the letter of _____.
- ☐ the drawings, sheets/fig _____, as originally filed,
 sheets/fig _____, filed with the demand,
 sheets/fig _____, filed with the letter of _____,
 sheets/fig _____, filed with the letter of _____.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 00/00340

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-5	YES
	Claims	6	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1-5	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-6	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

D1: Applied Catalysis A. General 1996, 142(1),
L1-L3,

D2: Synlett, 1994, 825-826.

1. A compound is not novel because it is produced using a new method. Thus, Claim 6 pertains to carbonates of Formula I independently of their production method. However, the claimed carbonates are clearly already known. Therefore, the subject matter of Claim 6 does not fulfil the requirements of PCT Article 33(2).

2. Document D1, which is regarded as the closest prior art, discloses a method for producing carbonates by reacting alcohols and alkyl halides with carbon dioxide in the presence of cesium carbonate (see Table I, Reaction 8).

Document D2 describes the production of carbamates of amines and carbon dioxide in the presence of an alkyl halide, cesium carbonate and a dipolar aprotic solvent (DMF).

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 00/00340

of the presence of a dipolar aprotic solvent.
Therefore, the subject matter of Claims 1 to 5 is
novel (PCT Article 33(2)).

3. Using this prior art as a point of departure, the
problem addressed by the present application can be
regarded as providing an alternative method for
producing carbonates.

In light of the teaching of D1 and the fact that a
dipolar aprotic solvent is used in a similar method
in D2, it is regarded as obvious to a person skilled
in the art to carry out the method described in D1
in the presence of a dipolar aprotic solvent to
provide an alternative method for producing
carbonates.

Therefore, the subject matter of Claims 1 to 5 is
not regarded as inventive (PCT Article 33(3)).

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 00/00340

VII. Certain defects in the international application

The following defects in the form or contents of the international application have been noted:

Contrary to PCT Rule 5.1(a)(ii), the description does not cite D1 or indicate the relevant prior art disclosed therein.

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

To:

MANSMANN, Ivo
Gödecke AG
Mooswaldallee 1
D-79090 Freiburg
ALLEMAGNE

Date of mailing (day/month/year) 03 August 2001 (03.08.01)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference PD-6381	
International application No. PCT/EP00/00340	International filing date (day/month/year) 18 January 2000 (18.01.00)

1. The following indications appeared on record concerning:

☒ the applicant ☐ the inventor ☐ the agent ☐ the common representative

Name and Address

GÖDECKE AKTIENGESELLSCHAFT
Salzufer 16
D-10587 Berlin
Germany

State of Nationality

DE

State of Residence

DE

Telephone No.

Facsimile No.

Teleprinter No.

2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

☒ the person ☐ the name ☐ the address ☐ the nationality ☐ the residence

Name and Address

GÖDECKE GMBH
Pfizerstrasse 1
76139 Karlsruhe
Germany

State of Nationality

DE

State of Residence

DE

Telephone No.

Facsimile No.

Teleprinter No.

3. Further observations, if necessary:

4. A copy of this notification has been sent to:

<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned
<input checked="" type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Athina Nickitas-Etienne

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents
 United States Patent and Trademark
 Office
 Box PCT
 Washington, D.C.20231
 ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 21 September 2000 (21.09.00)	
International application No. PCT/EP00/00340	Applicant's or agent's file reference PD-6381
International filing date (day/month/year) 18 January 2000 (18.01.00)	Priority date (day/month/year) 09 February 1999 (09.02.99)
Applicant BARTH, Hubert et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

04 August 2000 (04.08.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:2. The election ☒ was☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer R. E. Stoffel
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38


VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

REC'D 11 JAN 2001

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT PCT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts PD-6381		WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/00340	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 18/01/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 09/02/1999	
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C68/04			
Anmelder GÖDECKE AKTIENGESELLSCHAFT et al.			
<p>1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p><input type="checkbox"/> Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).</p> <p>Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.</p>			
<p>3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <ul style="list-style-type: none"> I <input checked="" type="checkbox"/> Grundlage des Berichts II <input type="checkbox"/> Priorität III <input type="checkbox"/> Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit IV <input type="checkbox"/> Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung V <input checked="" type="checkbox"/> Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung VI <input type="checkbox"/> Bestimmte angeführte Unterlagen VII <input checked="" type="checkbox"/> Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung VIII <input type="checkbox"/> Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung 			
Datum der Einreichung des Antrags 04/08/2000		Datum der Fertigstellung dieses Berichts 09.01.2001	
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465		Bevollmächtigter Bediensteter Jardon Alvarez, J Tel. Nr. +49 89 2399 8325	



I. Grundlage des Berichts

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

Beschreibung, Seiten:

1-13 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-6 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-5
	Nein: Ansprüche	6
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	1-5
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-6
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt

VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:
siehe Beiblatt

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

D1: Applied Catalysis A. General 1996, 142(1), L1-L3

D2: Synlett, 1994, 825 - 826

1. Eine Verbindung wird nicht schon dadurch neu, daß sie durch ein neues Verfahren hergestellt wird. Anspruch 6 betrifft dann Carbonate der Formel I unabhängig ihrer Herstellungsmethode. Die beanspruchten Carbonate sind aber offensichtlich bereits bekannt. Daher erfüllt der Gegenstand vom Anspruch 6 nicht die Voraussetzungen nach Artikel 33(2) PCT.
2. Das Dokument D1, welches als nächstliegender Stand der Technik angesehen wird, offenbart ein Verfahren zur Herstellung von Carbonaten durch Umsetzung von Alkoholen und Alkylhaliden mit Kohlendioxid in Gegenwart von Cesiumcarbonat (siehe Tabelle I, Umsetzung 8).

Das Dokument D2 beschreibt die Herstellung von Carbamaten aus Aminen und Kohlendioxid in Gegenwart von einem Alkylhalid, Cesiumcarbonat und einem dipolar aprotischen Lösungsmittel (DMF).

Das beanspruchte Verfahren unterscheidet sich von dem in D1 beschriebenen Verfahren durch die Anwesenheit eines dipolar aprotischen Lösungsmittels. Der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 5 ist daher neu (Art. 33(2) PCT).

3. Ausgehend von diesem Stand der Technik ist die Aufgabe der vorliegenden Anmeldung darin zu sehen, ein alternatives Verfahren zur Herstellung von Carbonaten bereitzustellen.

Angesichts der Lehre von D1 und der Tatsache, daß D2 in einem ähnlichen Verfahren ein dipolar aprotische Lösungsmittel verwendet, wird es für den Fachmann als naheliegend angesehen, das in D1 beschriebene Verfahren in Gegenwart eines dipolar aprotischen Lösungsmittels durchzuführen, um ein

alternatives Verfahren zur Herstellung von Carbonaten bereitzustellen.

Der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 5 wird daher als nicht erfinderischen angesehen (Artikel 33(3) PCT).

Zu Punkt VII

Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Im Widerspruch zu den Erfordernissen der Regel 5.1 a) ii) PCT werden in der Beschreibung weder der in dem Dokument D1 offenbarte einschlägige Stand der Technik noch dieses Dokument angegeben.

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts PD-6381	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 00/ 00340	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 18/01/2000	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 09/02/1999
Anmelder GÖDECKE AKTIENGESELLSCHAFT et al.		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der **Bezeichnung der Erfindung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der **Zusammenfassung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. _____

☐ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

☒ keine der Abb.

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C07C68/04 C07C69/96

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C07C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	FANG, SHUNNONG ET AL: "Direct synthesis of dimethyl carbonate from carbon dioxide and methanol catalyzed by base" APPL. CATAL., A (1996), 142(1), L1-L3 , XP000882681 das ganze Dokument	1-6
A	BUTCHER ET AL: "Carbamate esters: a simple, mild method of formation" SYNLETT, XP000882931 in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument	1-5



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

4. April 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

18/04/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Arias-Sanz, J

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	DATABASE WPI Section Ch, Week 199515 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A41, AN 1995-110592 XP002134803 & JP 07 033715 A (SHOWA DENKO KK), 3. Februar 1995 (1995-02-03)	1-5
X	Zusammenfassung -----	6

Information on patent family members

PCT/EP 00/00340

Patent document
cited in search report

Publication
date

Patent family member(s)

Publication
date

JP 7033715

A

03-02-1995

NONE